

PCT/JP 08/0403

日本国特許庁
JAPAN PATENT OFFICE

28.03.03

Rec'd PCT/PTO 27 SEP 2004

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office

出願年月日

Date of Application:

2002年11月12日

出願番号

Application Number:

特願2002-328477

[ST.10/C]:

[JP2002-328477]

REC'D 20 JUN 2003

WIPO

PCT

出願人

Applicant(s):

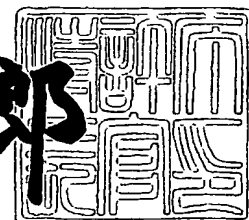
新日本製鐵株式会社

PRIORITY
DOCUMENT
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH RULE 17.1(a) OR (b)

2003年 6月 2日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

太田信一郎



出証番号 出証特2003-3042128

【書類名】 特許願

【整理番号】 1024998

【提出日】 平成14年11月12日

【あて先】 特許庁長官 太田 信一郎 殿

【国際特許分類】 C22C 38/02

【発明者】

【住所又は居所】 千葉県富津市新富 2 0 - 1 新日本製鐵株式会社 技術
開発本部内

【氏名】 中村 修一

【発明者】

【住所又は居所】 千葉県富津市新富 2 0 - 1 新日本製鐵株式会社 技術
開発本部内

【氏名】 本間 穂高

【特許出願人】

【識別番号】 000006655

【氏名又は名称】 新日本製鐵株式会社

【代理人】

【識別番号】 100077517

【弁理士】

【氏名又は名称】 石田 敬

【電話番号】 03-5470-1900

【選任した代理人】

【識別番号】 100092624

【弁理士】

【氏名又は名称】 鶴田 準一

【選任した代理人】

【識別番号】 100113918

【弁理士】

【氏名又は名称】 亀松 宏

【選任した代理人】

【識別番号】 100082898

【弁理士】

【氏名又は名称】 西山 雅也

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 036135

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 0018106

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 皮膜密着性の極めて優れた方向性電磁鋼板の製造方法

【特許請求の範囲】

【請求項1】 質量%で、Siを2.5～4.5%、Tiを0.1～0.4%、Cを $0.251 \times [Ti] + 0.005\%$ 以上含み、残部実質的にFeおよび不可避的不純物からなる鋼を溶製し、鋳造し、熱間圧延し、冷間圧延し、引き続き高温焼鈍を施すことを特徴とする皮膜密着性の極めて優れた方向性電磁鋼板の製造方法。

【請求項2】 前記冷間圧延の複数パスのパス間に100～500℃の温度域で1分以上保持する熱処理を少なくとも1回施して冷間圧延し、引き続き高温焼鈍を施すことを特徴とする請求項1に記載の皮膜密着性の極めて優れた方向性電磁鋼板の製造方法。

【請求項3】 前記冷間圧延を1パス目の出側以降100～500℃の温度域で行い、引き続き高温焼鈍を施すことを特徴とする請求項1に記載の皮膜密着性の極めて優れた方向性電磁鋼板の製造方法。

【請求項4】 質量%で、Siを2.5～4.5%、Tiを0.1～0.4%、Cを $0.251 \times [Ti] + 0.005\%$ 以上含み、残部実質的にFeおよび不可避的不純物からなる鋼を溶製し、鋳造し、熱間圧延し、冷間圧延し、引き続き高温焼鈍を施し、次いで、700℃以上の温度で平坦化焼鈍を行い、さらに、絶縁コーティングの塗布、焼き付けを行うことを特徴とする請求項1乃至3のいずれか1項に記載の皮膜密着性の極めて優れた方向性電磁鋼板の製造方法。

【請求項5】 前記熱間圧延で得た熱延板に700～1200℃の温度域で30秒～30分間の焼鈍を施すことを特徴とする請求項1乃至4のいずれか1項に記載の皮膜密着性の極めて優れた方向性電磁鋼板の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、皮膜密着性が極めて優れた方向性電磁鋼板を製造する方法に関するものである。

【0002】

【従来の技術】

方向性電磁鋼板は変圧器、回転機、リアクトル等の鉄心材料として、工業的に最も一般的に用いられる軟磁性材料であり、物理学で用いられるミラー指数で<100>と表現される、最も容易に磁化される方位が圧延方向にほぼ揃えられた結晶粒から構成される鋼板である。

【0003】

即ち、多結晶鋼板でありながら単結晶鋼板であるかのごとく特定方向への磁化特性が優れ、それ故に、鉄損（鉄心でのエネルギー損失）特性に優れた工業製品として望ましい材料である。

【0004】

方向性電磁鋼板は、一般に、二次再結晶と呼ばれる現象を活用して結晶の磁化容易軸を特定方向に揃えたものであり、工業技術として、いくつかの例が公に開示されている（例えば、特許文献1～3、参照）。

【0005】

上記技術によれば、二次再結晶はシリコンを多く含んだ鋼に、インヒビターと通称される第二分散相としてMnS他、種々の化合物を析出させ、冷間圧延と焼鈍とを組み合わせることで二次再結晶を発現させている。

【0006】

これらの製造方法においては、冷延後、仕上焼鈍に先立って、脱炭焼鈍を行うという共通点があるが、製鋼段階で調整した炭素は、二次再結晶の進行それ自体には全く不要な元素である。

【0007】

実際には、例えば、特許文献2（田口、坂倉）の方法では、炭素は、MnSとAlNを適切に分散析出させるために必要な元素、即ち、二次再結晶の準備のために必要な元素でしかなく、通常、二次再結晶を行う焼鈍工程前に鋼中から除去しなければならない。

【0008】

また、これらの方法では、熱延に先立って鋼塊またはスラブの加熱を1350

℃以上という超高温で実施しなければならず、この負担を回避するために、菅らは、スラブ加熱温度を低温化し二次再結晶に必要なインヒビターを冷延工程以後に作り込む新たな技術を発明している（特許文献4、参照）。

【0009】

この方法であれば、炭素を予め鋼中に含有させる必要性が低下し、脱炭焼鈍を省略することも可能と考えられるが、冷間圧延から二次再結晶焼鈍に至るまでに鋼板外部から窒素を鋼中にドーピングする必要があるが有り、結果としての焼鈍工程の省略はできていない。

【0010】

結論的に言えば、従来技術においては、二次再結晶の冶金原理に鑑みて、元来不要な脱炭焼鈍もしくは冷延と二次再結晶焼鈍に挟まれた独立工程としての焼鈍工程を、省略することが困難である。

【0011】

脱炭工程の省略という課題については、河面らによる発明（例えば、特許文献5参照）が更なる検討対象と成りうる。彼らは、旧来の方法を応用し、溶製段階で鋼中に炭素を含有させず、二次再結晶鋼板を得ることに成功している。しかし、実際には二次再結晶焼鈍に先立つ冷延後の焼鈍を完全には省略できてはいない。

【0012】

なぜならば、方向性電磁鋼板の製品要件である皮膜を形成するために、鋼板表面に僅かな酸化層を形成させて二次再結晶焼鈍に必要な焼鈍分離剤の一部と反応させなければならず、そのためには、脱炭焼鈍と同様の湿潤雰囲気中焼鈍を導入する方が技術的に容易であったからである。

【0013】

また、さらには、この方法においても、熱延に先立つ鋼塊あるいはスラブの加熱温度は1350℃以上の超高温でなければならず、大きな負担を強いられる技術であることに変わりはない。

【0014】

【特許文献1】

U. S. Pat. 第1965559号明細書 (1934年、P. N. Goss)

【特許文献2】

特公昭33-4710号公報 (田口、坂倉)

【特許文献3】

特公昭38-8214号公報 (今井、斎藤)

【特許文献4】

特開昭59-56522号公報 (特願昭57-165066号)

【特許文献5】

特開昭55-73818号公報

【0015】

【発明が解決しようとする課題】

スラブ加熱温度の低温化および脱炭焼鈍工程という負荷の軽減に対して、我々は、鋼にTi、Cを適量添加しTiC析出物をインヒビターとして作用させて、冷延板を直接仕上焼鈍に供することで方向性電磁鋼板を製造する方法を得た。

【0016】

この方法によれば、二次再結晶後不要となったTiCインヒビターは、やがて鋼板表面に偏析析出し皮膜様となって、方向性電磁鋼板の製品要件を満たすに至る。

【0017】

即ち、仕上焼鈍に先立つ鋼板表面での酸化層形成を不要とする。さらには、スラブ加熱温度は1250℃と普通鋼と同等であり、スラブ加熱温度の負担の少ない製造技術として成立しうる。

【0018】

前記の方法は、TiC析出物をインヒビターとして用いる新規の技術であるが故、二次再結晶発現の安定性などに関しては検討の余地があり、本発明者らは、前記方法における二次再結晶の安定性についてさらに詳細に検討した。

【0019】

その結果、製鋼成分におけるC量をTiC当量より多くすることによって二次

再結晶の安定性が格段に向上し、かつ、磁束密度 B_8 も併せて向上することを知見した。

【0020】

本発明の課題は、製造コストが安価で、密着性の極めて良好な皮膜をもつ磁気特性良好な方向性電磁鋼板の製造方法を提供すること、とりわけ、二次再結晶の安定性を高めることである。

【0021】

【課題を解決するための手段】

本発明者らは、 TiC をインヒビターとした場合の二次再結晶を安定化させる方法を探索するため、まず、二次再結晶過程での TiC 析出物の分布状態および結晶粒界の移動変化等を詳細に解析した。

【0022】

その結果、鋼中に析出している TiC の総量は、必ずしも減少せず、むしろ、 TiC の析出サイズが大きくなって、その個数が減り、粒界移動阻止力の低下を引き起こすことを突き止めた（析出物のピン止め力は、その数およびその断面積に比例するが、総量一定で析出サイズが大きくなると数は、サイズの3乗で減少し、断面積はサイズの2乗で増加し、その結果、ピン止め力は、析出サイズに反比例して減少する）。

【0023】

TiC の粗大化が容易であるという事実は、 C が極めて拡散しやすく、 TiC の固溶および再析出が活性化されていることと考えることができる。

【0024】

そこで、次に、本発明者らは、この特徴を活かした製造方法について検討した。具体的には、容易に粗大化してしまう TiC をインヒビターとして使用した場合であっても、二次再結晶を安定化させる方策について検討した。

【0025】

高温での TiC の安定性を高めるためには、 Ti 量、 C 量を増やすことが考えられる。このインヒビター強化と併せて二次再結晶に多大な影響を与える一次再結晶組織の改質も同時に行うことが可能な制御方法として、 TiC 当量以上の C

を添加すれば、効率的に二次再結晶を安定化でき、好ましい磁気特性を得ることができるのではないかと考え調査を行った。

【 0 0 2 6 】

その結果、以下に示す製造方法により安定した二次再結晶が確かに実現され、新たな発明の根幹技術となりうることを知見した。

【 0 0 2 7 】

そこで、この技術をさらに発展させるため、熱延板焼鈍に関する調査を引き続き行い、熱延板焼鈍の効果を確認した。本発明の要旨とするところは以下のとおりである。

【 0 0 2 8 】

(1) 質量%で、Siを2.5～4.5%、Tiを0.1～0.4%、Cを $0.251 \times [\text{Ti}] + 0.005\%$ 以上含み、残部実質的にFeおよび不可避免の不純物からなる鋼を溶製し、鑄造し、熱間圧延し、冷間圧延し、引き続き高温焼鈍を施すことを特徴とする皮膜密着性の極めて優れた方向性電磁鋼板の製造方法。

【 0 0 2 9 】

(2) 前記冷間圧延の複数パスのパス間に100～500℃の温度域で1分以上保持する熱処理を少なくとも1回施して冷間圧延し、引き続き高温焼鈍を施すことを特徴とする前記(1)に記載の皮膜密着性の極めて優れた方向性電磁鋼板の製造方法。

【 0 0 3 0 】

(3) 前記冷間圧延を1パス目の出側以降100～500℃の温度域で行い、引き続き高温焼鈍を施すことを特徴とする前記(1)に記載の皮膜密着性の極めて優れた方向性電磁鋼板の製造方法。

【 0 0 3 1 】

(4) 質量%で、Siを2.5～4.5%、Tiを0.1～0.4%、Cを $0.251 \times [\text{Ti}] + 0.005\%$ 以上含み、残部実質的にFeおよび不可避免の不純物からなる鋼を溶製し、鑄造し、熱間圧延し、冷間圧延し、引き続き高温焼鈍を施し、次いで、700℃以上の温度で平坦化焼鈍を行い、さらに、絶縁コー

ティングの塗布、焼き付けを行うことを特徴とする前記（１）乃至（３）のいずれかに記載の皮膜密着性の極めて優れた方向性電磁鋼板の製造方法。

【 0 0 3 2 】

（５）前記熱間圧延で得た熱延板に700～1200℃の温度域で30秒～30分間の焼鈍を施すことを特徴とする前記（１）乃至（４）のいずれかに記載の皮膜密着性の極めて優れた方向性電磁鋼板の製造方法。

【 0 0 3 3 】

【発明の実施の形態】

次に、本発明の構成要件を限定した理由について述べる。

【 0 0 3 4 】

まず、鋼の溶製成分について述べる。なお、％は、質量％を意味する。

【 0 0 3 5 】

シリコン量は、4.5％を超えると脆化が激しくなり、スリット、剪断等の加工で所定の形状を得ることが困難になることから4.5％以下とした。2.5％を下回ると、商用周波数における使用で発生するエネルギー損失のうちの渦電流損が増大して磁気特性が劣化するので、2.5％以上とした。

【 0 0 3 6 】

チタンは0.1％を下回ると、電気機器成型時の熱処理でTiC皮膜の分解が発生するので0.1％以上とした。0.4％を超えると同じ熱処理時に雰囲気と反応して鋼中に介在物を発生させるので0.4％以下とした。

【 0 0 3 7 】

また、本発明における特徴は、Ti添加量に応じて、以下の数式で表されるように、TiC当量以上の炭素量に溶製成分を調整することにある。

【 0 0 3 8 】

即ち、炭素量を $0.251 \times [\text{Ti}] + 0.005\%$ 以上とすることが安定的に二次再結晶を発現させる上で非常に重要である。

【 0 0 3 9 】

炭素量の上限については二次再結晶安定化の観点からは特に規定しないが、TiC当量の炭素量に対する過剰炭素量が0.05％を超えてしまうと、二次再結

晶完了後の純化焼鈍で鋼中の炭素量を 0.0030% 以下とすることが困難となるので、好ましくない。

【0040】

図1に、上記の結論を導いた実験結果を示す。実験においては、Si:3.5%、Ti:0.2~0.3%、C:0.04~0.10%の鋼を、1250℃のスラブ加熱温度で熱延し、板厚を2.3mmとし、冷間圧延し、板厚を0.22mmとし、その後仕上焼鈍として、乾水素中で950℃まで加熱した後、2時間保定し、さらに、1150℃まで昇温して20時間保持した。

【0041】

図1に、得られた試料のB8の平均値を示す。このB8の意味するところは、単なる磁気特性の評価値だけでなく、製造安定性の評価値でもある。

【0042】

安定的に磁性が得られない場合、B8の低いサンプルが比較的多くなるので、簡便にB8の平均値を用いて製造安定性の評価も行っている。

【0043】

図1より、TiC当量よりも0.005%以上多く添加した炭素の効果によりB8向上効果が出現し、その効果が顕著であることがわかる。

【0044】

この理由については、明確に結論づけられないが、二次再結晶温度域でのTiCのライブニング抑制効果および一次再結晶組織の改質効果の両者が作用しているものと考えており、実際に、ライブニングの抑制効果と一次再結晶組織の変化を確認している。

【0045】

また、冷延工程においては、圧延を100~500℃の温度域で行うこと、または、冷間圧延の複数パスのパス間に100~500℃の温度域1分以上保持する熱処理を少なくとも1回以上施すことにより、添加した炭素の効果をより顕著に引き出し、良好な二次再結晶が実現する。

【0046】

本発明における仕上焼鈍後、基本的には、TiCからなる極めて密着性が良く

強固な皮膜が形成されるが、これは完全な絶縁体ではないので、電気機器に組み込む際の特性向上を図るために、絶縁コーティングの塗布、焼き付けを行うことは有用である。

【 0 0 4 7 】

得られた方向性電磁鋼板の表面に傷導入、歪み付与、溝形成および異物混入のいずれかの手段によって磁区を細分化すると、鉄損が大きく低減する効果がある。TiC皮膜を有する本発明に係る方向性電磁鋼板に、この様な処置を施した場合、TiC皮膜を有さない従来の材料に比べて皮膜の軟化、張力の低下が見られず、極めて有利である。

【 0 0 4 8 】

【実施例】

以下、実施例により、さらに詳しく本発明を説明する。

【 0 0 4 9 】

(実施例 1)

Si:3.5%、Ti:0.2%、C:0.05~0.1%の鋼を真空溶製し、1250℃でスラブ加熱した後、2.3mm厚まで熱延し、冷延では板厚を0.23mmとし、引き続き、乾水素中で950℃まで加熱した後、2時間保定し、さらに、1150℃まで昇温して20時間保持した。その後、磁気測定を行い、得られたB8値の平均値を表1に掲げた。

【 0 0 5 0 】

【表 1】

表 1

C量 (%)	磁性 : B8 (T)	
0.043	1.80	比較例
0.051	1.82	比較例
0.060	1.86	発明例
0.071	1.87	発明例
0.085	1.88	発明例
0.104	1.87	発明例

【0051】

表1より、TiC当量よりも0.005%以上多くCを添加することにより、磁気特性が向上する効果が見て取れる。

【0052】

(実施例2)

実施例1の条件において、C量が0.085%のものについて、パス毎エージングを施して冷間圧延を施した場合の磁気特性を表2に示す。

【0053】

【表2】

表2

符号	冷延途中熱処理回数	熱処理温度 (°C)	熱処理時間 (分)	磁性：B8 (T)	
A	0	—	—	1.88	発明例
B	1	50	60	1.87	発明例
C	1	100	30	1.91	発明例
D	1	200	5	1.92	発明例
E	1	300	1	1.92	発明例
F	1	400	1	1.90	発明例
G	1	500	1	1.90	発明例
H	1	600	1	1.75	比較例
J	1	600	60	二次再結晶 せず	比較例

【0054】

表2より、冷間圧延途中の熱処理により磁気特性が向上する効果が見て取れる。

【0055】

表2中、本発明材に絶縁コーティングを塗布し、さらに、表3に掲げる磁区制御方法を適用し鉄損を評価したところ、下記の特性が得られた。本発明材において磁区制御効果が明瞭に現れている。

【0056】

【表 3】

表 3

符号	磁性 : B8 (T)	磁区制御前鉄損 : W17/50 (W/kg)	磁区制御方法	磁区制御前鉄損 : W17/50 (W/kg)
C	1. 9 1	0. 8 5	レーザー照射	0. 7 3
D	1. 9 2	0. 8 3	溝形成	0. 7 3
E	1. 9 2	0. 8 2	レーザー照射	0. 7 0
F	1. 9 0	0. 8 7	レーザー照射	0. 7 6
G	1. 9 0	0. 8 8	溝形成	0. 7 8

【 0 0 5 7 】

(実施例 3)

実施例 1 の条件において、C 量が 0. 0 8 5 % のものについて、圧延温度を変化させて冷間圧延を施した場合の磁気特性を表 4 に示す。

【 0 0 5 8 】

なお、圧延温度は 1 パス目出側以降の出側温度の平均値である。

【 0 0 5 9 】

【表 4】

表 4

圧延温度 (°C)	磁性 : B 8 (T)	
3 1	1. 8 8	発明例
5 6	1. 8 8	発明例
1 0 2	1. 9 0	発明例
2 2 6	1. 9 1	発明例
3 1 2	1. 9 2	発明例
3 9 2	1. 9 1	発明例
4 7 5	1. 9 0	発明例
5 5 2	1. 8 2	比較例

【 0 0 6 0 】

表 4 から明らかなように、圧延温度を 1 0 0 ~ 5 0 0 °C の範囲とした場合に、

優れた磁気特性が得られることが確認できた。

【0061】

(実施例4)

実施例1の条件において、C量が0.085%のものについて、熱延板に1050℃×30秒の熱延板焼鈍を施し、300℃×5分×5回のパス毎エージングを施した場合の磁気特性を表5に示す。

【0062】

【表5】

表5

熱延板焼鈍	パス毎エージング	磁性：B ₈ (T)	
なし	なし	1.88	発明例
あり	なし	1.91	発明例
あり	あり	1.94	発明例

【0063】

表5より、熱延板焼鈍を施すことにより、B₈が向上し、パス毎エージングとの複合により、さらにB₈が向上することがわかる。

【0064】

【発明の効果】

本発明により、脱炭焼鈍を省略でき製造コストが安価で、密着性の極めて良好な皮膜をもつ磁気特性良好な方向性電磁鋼板を製造することが可能になった。

【図面の簡単な説明】

【図1】

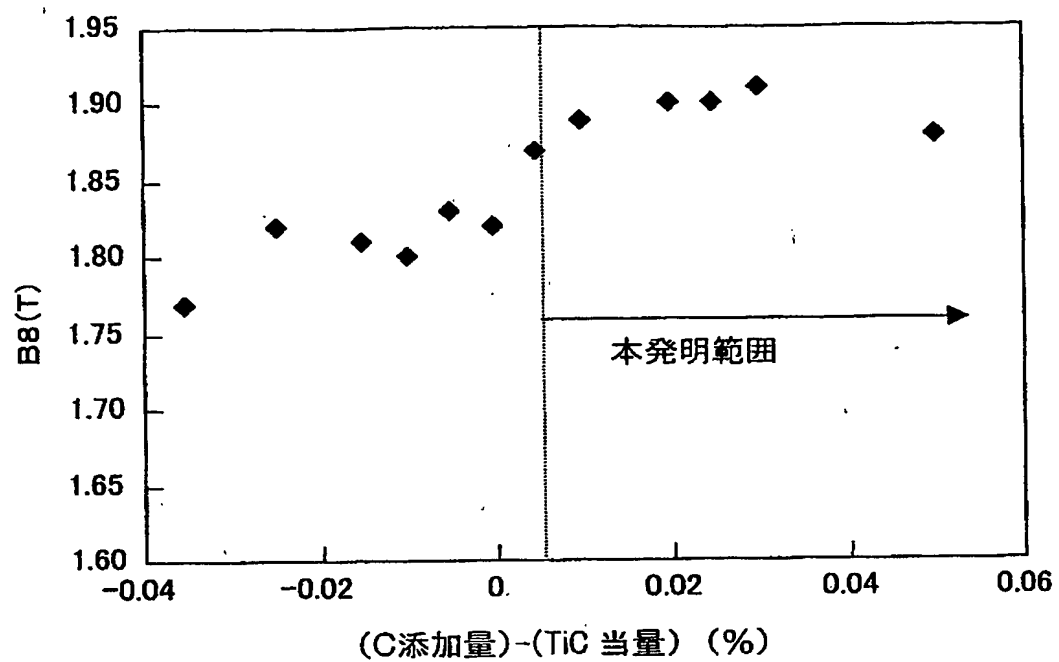
TiC当量を基準として整理したC添加量が及ぼす鋼板の磁束密度B₈への影響を示す図である。

【書類名】

図面

【図 1】

図 1



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 製造コストが安価で、密着性のきわめて良好な皮膜をもつ磁気特性良好な方向性電磁鋼板の製造方法を提供する。

【解決手段】 T i C をインヒビターに用い、脱炭工程を省略し、かつ高温焼鈍時に密着性のきわめて良好な T i C 皮膜を形成させ、製鋼 C 量を T i C 当量よりも過剰に添加することにより製造コストが安価で、密着性のきわめて良好な皮膜をもつ磁気特性良好な方向性電磁鋼板を実現する。

【選択図】 図 1

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [000006655]

1. 変更年月日	1990年 8月10日
[変更理由]	新規登録
住 所	東京都千代田区大手町2丁目6番3号
氏 名	新日本製鐵株式会社